

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2001年12月6日 (06.12.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/93356 A1

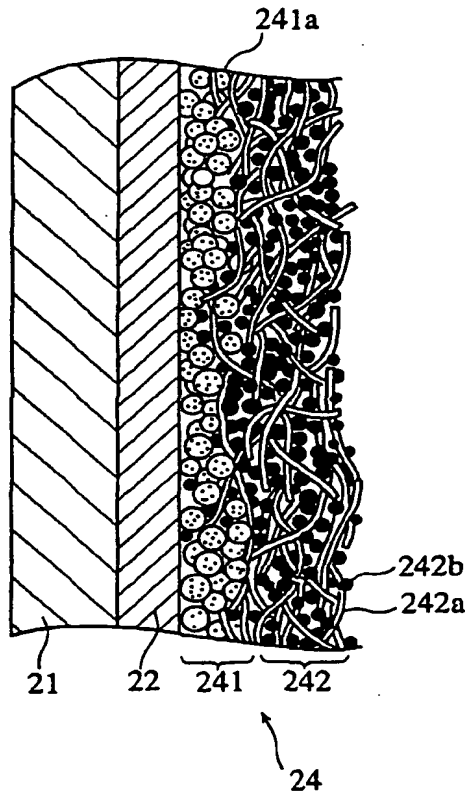
- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10, 4/86 干570-0083 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/04505
- (22) 国際出願日: 2001年5月29日 (29.05.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2000-160055 2000年5月30日 (30.05.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三洋電機株式会社 (SANYO ELECTRIC CO., LTD.) [JP/JP];
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 安尾耕司 (YASUO, Takashi) [JP/JP]; 干326-0067 栃木県足利市江川町3-3-2-102 Tochigi (JP). 鈴木修一 (SUZUKI, Shuichi) [JP/JP]; 干370-0517 群馬県邑楽郡大泉町西小泉2-14-14-306 Gunma (JP). 近野義人 (CHIKANO, Yoshito) [JP/JP]; 干370-0532 群馬県邑楽郡大泉町坂田6-6-3-1E Gunma (JP). 米津育郎 (YONEZU, Ikuo) [JP/JP]; 干573-0084 大阪府枚方市香里ヶ丘8-16-9 Osaka (JP).

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

包袋済

(54) 発明の名称: 燃料電池



(57) Abstract: A fuel cell comprising, disposed in the order mentioned, a cathode and a gas diffusion layer formed on one surface of a solid polymer film, and an anode and a gas diffusion layer formed on the other surface of the film, wherein an oxidizing gas is allowed to flow along the gas diffusion layer surface on the cathode side, and a fuel gas along the gas diffusion layer surface on the anode side. The fuel cell further has the gas diffusion layer on the cathode side comprise a first layer in contact with the cathode and a second layer thicker than the first layer to allow a oxidizing gas to flow along the surface thereof, thereby solving the problem of drying up the film that should be kept wet for an improved ion conductivity; in fact, a humidifying method of keeping, in the vicinity of the cathode, water produced by power generating reaction of the fuel cell has been used, but the water excessively evaporates into the oxidizing gas in some operating conditions to dry up the film.

[続葉有]



(74) 代理人: 中島司朗(NAKAJIMA, Shiro); 〒531-0072 大阪府大阪市北区豊崎三丁目2番1号 淀川5番館6F Osaka (JP).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書  
— 補正書

(81) 指定国 (国内): CA, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

---

(57) 要約:

本発明は、固体高分子膜の一方の面にカソードとガス拡散層、前記膜の他方の面にアノードとガス拡散層がこの順に配されてなり、カソード側のガス拡散層表面に沿って酸化剤ガス、アノード側のガス拡散層表面に沿って燃料ガスがそれぞれ流通される燃料電池に関する。

前記燃料電池においては、前記膜のイオン伝導性向上のために、この膜を湿潤しなければならない。このため、前記燃料電池の発電反応によって生成する水をカソード付近で保持する加湿方式等が採用されていたが、運転条件によっては、前記水が過剰に酸化剤ガス中に蒸発してしまい、前記膜が乾燥してしまうという問題があった。

本発明は、前記燃料電池において、カソード側のガス拡散層を、カソードと接する第一層と、当該第一層よりも厚く、その表面に沿って酸化剤ガスが流通する第二層とから構成すること等によって、前記問題の解決を図った。

## 明 細 書

### 燃 料 電 池

#### 技 術 分 野

本発明は固体高分子型燃料電池や直接メタノール型燃料電池などの燃料電池において、セル内における固体高分子膜の湿潤性と、ガス拡散性を維持するための改良技術に関する。

#### 技 術 背 景

燃料電池は通常、アノード側に水素を含むアノードガス（燃料）、カソード側に酸素を含むカソードガス（酸化剤）をそれぞれ供給し、水素と酸素を反応させて発電を行う。カソードガスには一般的に空気が用いられる。アノードガスには純水素ガスのほか、天然ガスやナフサ等の軽質炭化水素などの燃料を改質して水素リッチな改質ガスとしたものが用いられる。

燃料電池には様々な種類があるが、近年では固体高分子膜を電解質とする固体高分子型燃料電池（PEFC：Polymer Electrolyte Fuel Cell）の研究が積極的になされている。固体高分子型燃料電池は、例えば、フッ素系陽イオン交換樹脂等からなる電解質の固体高分子膜の両主面をカソードとアノードで挟持し、さらにこれを２枚のガス拡散層で挟持したセル構成を持つ。

図 7（a）は、固体高分子膜付近、カソード、ガス拡散層の部分断面図である。ここにおいてガス拡散層は、セルロース系などのカーボン繊維にカーボン粒子を付着させた構成を有しており、固体高分子膜にアノードガス、

カソードガスを均一的に拡散させて供給する働きを持つ（具体的には特開平 5-283082 号公報、特開平 6-52864 号公報、特開平 7-78617 号公報等を参照のこと）。

実用的な固体高分子型燃料電池は、このような基本構造を持つ単位セルを多数積層し、高出力を得ている。

固体高分子型燃料電池は運転時において、固体高分子膜のイオン伝導性を高めて内部抵抗を下げるためにこれを湿潤させなければならない。このため、例えば燃料電池に供給するアノードガスを予め加湿し、これによって固体高分子膜を加湿する加湿方式が一般的に採られている。また、燃料電池の発電反応では固体高分子膜とカソードの接する付近で生成水が生じるので、この生成水を保持して固体高分子膜を湿潤させる加湿方式を採用する場合もある。

しかしながら上記セル構成では、図 7 (b) に示すような問題が見られることがある（当図ではガス拡散層の図示を簡略化している）。すなわち、燃料電池の発電反応によって、固体高分子膜とカソードの接する付近で発生した生成水が、運転条件によっては（酸化剤ガスの利用率が少ないときなど）、ガス拡散層を通じてカソードガス中に過剰に蒸発してしまい、固体高分子膜が乾燥して内部抵抗が増加し、発電効率が低下するときがある。

これに対し、例えばカーボン繊維に付着させるカーボン粒子の量を増加させたり、カーボン繊維の密度を高めるといった方法により、生成水の蒸発をより強力に抑制する方法が考えられる。しかしながら、この方法は水分蒸発の抑制に対してはある程度有効なものの、反対に効果が強すぎて、かえって保水量の好ましくない増大を招

く場合がある。これが生じると、水がガス拡散層の気孔（カーボン粒子の付着したカーボン繊維間の間隙）を閉塞し、固体高分子膜に供給するガスの拡散性が低下して、やはり結果的に発電効率を低下させることにつながる。このような問題は特に、固体高分子膜が薄く（特に  $50\mu\text{m}$  程度に至るほど薄い）、当該膜中の水分量が限られる場合に顕著になりやすく、その対策を早急に講じる必要がある。

このように、運転条件が変動しても、安定して固体高分子膜を湿潤させ、かつガス拡散性を確保するためには、いまだ技術改良の余地があると考えられる。

#### 発明の開示

本発明は、上記課題に鑑みてなされたものであって、その目的は固体高分子型などの燃料電池において、運転条件が変わってもガス拡散性と固体高分子膜の湿潤性を良好に保つことにより、安定した発電が可能な燃料電池を提供することにある。

上記目的は、電解質膜の一方の面にカソードとガス拡散層、電解質の他方の面にアノードとガス拡散層がこの順に配されてなるセル構成を有し、カソード側のガス拡散層表面に沿って酸化剤ガス、アノード側のガス拡散層表面に沿って燃料ガスがそれぞれ流通されることにより発電する燃料電池であって、カソード側のガス拡散層は、カソードと接する第一層と、当該第一層よりも厚く、その表面に沿って酸化剤ガスが流通する第二層から構成することにより、ガス拡散層の機能を部分的に変えることができる。したがって、燃料電池の加湿条件やガス利用

率の広い範囲で安定した燃料電池の稼働が実現できる。

このようなカソード側のガス拡散層は、具体的には、繊維状の多孔性基体（カーボンペーパーなど）に導電性粒子（カーボン粒子など）を付着させることによって構成することができる。

なお、このとき第二層の気孔の平均孔径が第一層の気孔の平均孔径よりも大きい構成とすることによって、平均孔径が比較的小さい第一層で保水を図って固体高分子膜の湿潤性を保つ一方、平均孔径が比較的大きい第二層により、良好なガス拡散性を確保することが可能となる。

ここで上記「気孔」とは、多孔性基体の繊維間隙、または前記繊維に付着した導電性粒子間の間隙、或いは前記繊維と前記導電性粒子の間隙によって形成されるものである。また上記「平均孔径」とは、多孔性基体の繊維間隙、または前記繊維に付着した導電性粒子間の間隙、或いは前記繊維と前記導電性粒子の間隙の各値を、第一層あるいは第二層のそれぞれにおいて平均したものを示す。

前記気孔のサイズは、導電性粒子の付着程度によって決定されるので、この付着程度をガス拡散層で部分的に調整することによって、前記第一層と第二層を形成することができる。このような気孔の平均孔径は、特開平10-356447号公報に開示されているように、例えば島津製ポアサイザ9310を用い、公知の水銀圧入法により測定することができる。

ここで、前記第一層のカーボン粒子は、ファーネスブラック、或いはファーネスブラックにアセチレンブラック、膨張黒鉛、繊維状黒鉛から選ばれたものを混合して

構成することができ、前記第二層のカーボン粒子は、アセチレンブラック、或いはアセチレンブラックにファーマスブラックを混合して構成することができる。このように市販されている材料を用いることによって、燃料電池の製造が容易になるとともに、コストの低減を図れる。

このようにカソード側のガス拡散層をカーボン粒子と撥水性樹脂からなる多孔性基体で構成する場合、後述の実施例によって、次の条件のものが、本発明の効果を良好に得るために望ましいと考えられる。

すなわち、前記第一層中に含まれるカーボン粒子は平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g} \sim 1000\text{m}^2/\text{g}$  であり、前記第二層中に含まれるカーボン粒子の平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  未満であるとする、第一層では比較的大きい比表面積のカーボン粒子を用いることによって保水性が確保され、固体高分子膜の湿潤性を良好に保つことができる。また、第二層では比較的小さい比表面積のカーボン粒子を用いることによって、適切な水切れを確保し、ガス流通性が向上する。なお、上記平均比表面積の数値は、本発明の効果を良好に得るために本願発明者らによって見いだされた値である。

さらに、前記第一層および第二層からなるカソード側のガス拡散層は、保水量が  $0.5\text{mg}/\text{cm}^2 \sim 1.5\text{mg}/\text{cm}^2$ 、かつ保水密度が  $0.05\text{g}/\text{cm}^3 \sim 0.5\text{g}/\text{cm}^3$  とすることにより、第一層を中心に保水領域を確保することが可能となり、固体高分子膜の湿潤性を良好に保持することができる。

ここで、「保水量」とは、イオン交換水中で1時間浸漬、煮沸した後、室温まで冷却した被測定物に保持される水

の単位面積当たり重量と定義する。この「単位面積」とは、導電性保水手段が講じられている領域の単位面積を指す。また「保水密度」とは、保水手段が講じられた領域の厚みで、前記保水量を除した値、すなわち、保水手段が講ぜられた領域の体積あたりの保水重量と定義する。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、実施の形態の固体高分子型燃料電池を構成するセルユニットの組立図である。

図 2 は、実施の形態のセル周辺構成の断面図である。

図 3 は、ガス拡散層（第二層）にガスが拡散する様子を示すセル周辺構成の断面図である。

図 4 は、ガス拡散層（第一層）が保水作用をなす様子を示すセル周辺構成の断面図である。

図 5 は、セル電圧と酸化剤利用率の関係を示すグラフである。

図 6 は、セル電圧の経時変化の様子を示すグラフである。

図 7 は、従来のセル周辺構成の断面図である。

(a) はカーボン粒子とカーボン繊維の様子を示す図である。

(b) はガス拡散層から過剰な水分蒸発が発生する様子を示す図である。

#### 発明を実施するための好ましい形態

##### 1. 実施の形態

以下、本発明の燃料電池の一適用例（固体高分子型燃料電池）について説明する。



### 1-1. セルユニットの構成

図 1 は、かかる本実施の形態の固体高分子型燃料電池を構成するセルユニット 10 の組立図である。本図に示すように、セルユニット 10 は全体として、カソード側チャンネルプレート 60 とアノード側チャンネルプレート 50 との間にセル 20 を配した構成を持つ。

セル 20 は固体高分子膜 21、電極 22、23（カソード 22、アノード 23）、カソード側ガス拡散層 24、アノード側ガス拡散層 25 等で構成される。なお図 1 において、アノード 23 は固体高分子膜 21 の下面側にあるので破線で表示している。

このセル 20 のカソード 22 側が、ガスケット 40 を介してカソード側チャンネルプレート 60 に重ねられている。また、アノード 23 側はガスケット 30 を介してアノード側チャンネルプレート 50 に重ねられている。これらアノード 22 とカソード 23 は、触媒担持粒子（白金担持カーボン）を含んでなるシート状成型体であって、触媒層あるいは反応層などと呼ばれる。

カソード 22 とカソード側チャンネルプレート 60 の間、並びにアノード 23 とアノード側チャンネルプレート 50 との間には、前記各ガス拡散層 24、25 がそれぞれ介挿されている。これら各ガス拡散層 24、25 は、電極 22、23 とチャンネルプレート 50、60 との電流の流れを確保するものであって集電体層とも称される。

アノード側チャンネルプレート 50 はフェノール樹脂などの樹脂材料にカーボン粉末を混合したものを射出成形してなる部材であって、アノード側ガス拡散層 25 と対向する面（図 1 では下面）において、x 方向を長手方向と

して y 方向に一定間隔毎にリブ 56 が並設され、これにより同方向にアノードガス（純水素または水素リッチな改質ガス）を流通させるチャンネル 55 が形成されている。

なお実施の形態においては、アノードガスは加湿されてセルユニット 10 に供給される外部加湿方式として説明するが、本発明はこれに限定するものではなく、内部加湿方式であってもよい。

カソード側チャンネルプレート 60 はアノード側チャンネルプレート 50 とほぼ同様の部材であり、当図からは見えないが、カソード側ガス拡散層 24 と対向する面において、y 方向を長手方向として x 方向に一定間隔毎にリブが並設され、これにより同方向にカソードガス（空気などの酸化剤）を流通させるチャンネルが形成されている。

さらに、固体高分子膜 21、ガasket 30、40、アノード側チャンネルプレート 50、カソード側チャンネルプレート 60 には内部マニホールドを形成するために、各主面の四隅に開孔部 61～64、41～44、211～214、31～34、51～54（44、214、34、54 は不図示）が設けてあり、このうち開孔部 53、33、213、43、63 によりアノード側チャンネルプレート 50 のチャンネル 55 にアノードガスが供給され、開孔部 51、31、211、41、61 から排出される。また、開孔部 54、34、214、44、64 によりカソード側チャンネルプレート 60 のチャンネルにカソードガスが供給され、開孔部 52、32、212、42、62 から排出される。

このような各開口部 31、…のうち、カソード側ガス拡散層 24 へのカソードガス導入口としては開口部 64 が位置する。

なおセルユニット 10 は、実際には高出力の電力が取り

出せるように仕切板を介して複数個積層され、その両端が一对の端板で固定された構成（セルスタック）に組み上げられている。

ここにおいて、本実施の形態の主な特徴はセル 20 の構成中にある。次に、固体高分子膜 21 を中心とするセル 20 の各構成について詳細に説明する。

#### 1-2. セル構成

固体高分子膜 21 は、パーフルオロカーボンスルホン酸などのフッ素系陽イオン交換樹脂からなる電解質膜であり、ここでは面積  $144\text{cm}^2$ 、x 方向幅  $12\text{cm}$  × y 方向長さ  $12\text{cm}$  × z 方向厚さ約  $50\mu\text{m}$  のサイズに設定されている。

電極 22 (23) は、固体高分子膜 21 よりやや小型のカーボンブラックからなる膜状電極（電極面積  $100\text{cm}^2$ 、x 方向幅  $10\text{cm}$  × y 方向長さ  $10\text{cm}$  × z 方向厚さ  $20\mu\text{m}$ ）であって、当該電極 22、23 とサイズがほぼ同じカソード側ガス拡散層 24（アノード側ガス拡散層 25）の表面に積層してあり、固体高分子膜 21 の主面の中央部分に合わせて、ホットプレスにより圧着されている。

各ガス拡散層 24、25 は、繊維状の多孔性基体であるカーボンペーパー（例えば厚みが約  $200\mu\text{m}$ ）に、撥水性樹脂（テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP））が塗布されたのち、この多孔性基体に導電性粒子であるカーボン粒子が充填された構成を有する。

ここにおいて、図 2 はカソード側ガス拡散層 24 を中心とするセルの部分断面図である。当図に示されるように本実施の形態の特徴は、カソード側ガス拡散層 24 が、固体高分子膜 21 と接する主面側からその厚み方向（z 方

向) に沿って、平均孔径の比較的小さい(例えば  $10\mu\text{m}$  未満の) 第一層 241 と、平均孔径の比較的大きい(例えば  $10\mu\text{m}$  以上の) 第二層 242 に分けられている点にある。さらに第一層 241 には平均比表面積が  $100\sim 1000\text{cm}^2/\text{g}$  のカーボン粒子 241b、第二層 242 には平均比表面積が  $100\text{cm}^2/\text{g}$  未満のカーボン粒子 242a がそれぞれ含まれている。すなわち、第一層 241 はカーボン粒子 241b がカーボン繊維 241a に付着してなり、これにカーボン粒子 242b が被覆するように付着して第二層 242 が構成されている。

このように本実施の形態では、カソード側ガス拡散層 24 を厚み方向に沿って平均孔径のサイズに差を持たせ、層内部のカーボン粒子の比表面積を変化させた構成により、カソード側ガス拡散層 24 では、カソードガスの拡散性が第一層 241 よりも第二層 242 で高く、保水性が第二層 242 よりも第一層 241 で高い構成になっている(詳細を後述する)。

また、ガス拡散層 24 の厚みは従来と変わらない  $200\mu\text{m}$  としてあり、このうち第一層 241 と第二層 242 の厚みは、ここでは一例としてそれぞれ  $10\mu\text{m}$  と  $190\mu\text{m}$  に設定してあるが、本発明はこれに限らず適宜厚みを調節するようにしてもよいが、上記構成のように、第二層 242 の厚みを第一層 241 の厚みより厚くして、保水性とガス拡散性の両方が効率よく両立できるようにする必要がある。

なお、カソード側ガス拡散層 24 の厚みをあまり厚くすると、ガス拡散性が低下するので、出来れば従来とほぼ同様( $200\mu\text{m}$  前後)の厚みとするのが望ましい。

また、第一層 241 は部分的にカソードガスと直接触れる構成（すなわち第二層 242 を部分的に設けない構成）にしてもよいが、固体高分子膜 21 の湿潤性とカソードガスの拡散性を得るためには、やはり実施の形態のように第二層 242 と積層するのが望ましい。

### 1-3. セルの作製方法

ここでは実施の形態のセル 20 の作製方法の一例を説明する。

まず固体高分子膜として、フッ素系陽イオン交換樹脂膜（例えば厚み  $50\mu\text{m}$  の DuPont 社製 Nafion112 膜）を所定の寸法に合わせて用意する。なお固体高分子膜はフッ素系に限らず、これ以外の陽イオン交換樹脂であってもよい。

カソード側ガス拡散層は、厚さ  $200\mu\text{m}$  程度のカーボンペーパーを用意し、これに撥水性樹脂（FEP）を 16 wt % で含むアルコール分散溶液に含浸させたのち、約  $380^\circ\text{C}$  で 1 時間焼成することにより作製する。

ここで上記カーボンペーパーとしては、石油ピッチ系、ポリアクリロニトリル系、セルロース系などのカーボン繊維で、市販されているカーボンペーパー（例えば東レ TGP-H-060）を用いることができる。カーボン繊維の取りうる間隙のサイズによって、ガス拡散層の平均孔径の値が変わってくるが、例えば上記したカーボンペーパー（東レ TGP-H-060）を用いると、実施の形態と同様の平均孔径（第一層 241 は  $10\mu\text{m}$  未満、第二層 242 は  $10\mu\text{m}$  以上の平均孔径）を有するガス拡散層を作製することができる。

また撥水性樹脂としてはフッ素樹脂が好適であり、ポ

リテトラフルオロエチレン (PTFE、例えばデュポン社製テフロン)、パーフルオロカーボンスルホン酸 (例えばデュポン社製ナフィオン (Nafion))、テトラフルオロエチレンーペルフルオロアルキルビニルエーテル共重合体 (PF EA)、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体 (FEP)、ポリクロロトリフルオロエチレン (PCTFE)、ポリフッ化ビニリデン (PVDF)、ポリフッ化ビニル (PVF)、テトラフルオロエチレンーエチレン共重合体 (ETFE) 等から選んだものを用いることができる。

このように撥水性樹脂をカーボンペーパーに付着させたら、次に平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  未満 (一例として、具体的には約  $68\text{m}^2/\text{g}$  のカーボン粒子 (例えば電気化学工業製デンカブラック、平均粒子径  $42\text{nm}$ ) および PTFE ディスパーションを混合してなるスラリー (カーボン粒子 : PTFE = 10 : 11 の重量混合比) を、前記カーボンペーパーの片主面にブレード板を用いて均一かつ平坦に塗布し含浸させる。そして室温で乾燥させる。第二層の厚みはブレード板で塗布するスラリーの量によって調整する。

次に第一層を形成する。第一層は、まず平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  以上 (一例として、具体的には約  $950\text{m}^2/\text{g}$ ) のカーボン粒子 (例えば AKZO 製ケッチェンブラック EC、平均粒子径  $30\text{nm}$ ) および PTFE ディスパーションを混合してなるスラリー (カーボン粒子 : PTFE = 10 : 11 の重量混合比) を作製し、これを再びブレード板を用いて前記第一層を作製したカーボンペーパー表面に重ねて塗布し、室温で乾燥させた後、加熱処理を行う

(例えば 360℃ で 2 時間程度)。

これにより、カソード側ガス拡散層の第一層および第二層が作製される。

なお、カーボン粒子のサイズは直径がせいぜい数十  $\mu\text{m}$  と多孔性基体の繊維の太さに比べて極めて小さいが、カーボン粒子の付着程度によってガス拡散層の気孔の平均孔径のサイズを調整することができる。

なお、上記第一層に用いるカーボン粒子は、基本的に平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  以上であればよいが、実際には粒子の分散性の点から、平均比表面積の上限値は  $1000\text{m}^2/\text{g}$  以下が望ましいと思われる。また第二層に用いるカーボン粒子の平均比表面積は、 $100\text{m}^2/\text{g}$  未満であればよいが、これも実際には  $50\text{m}^2/\text{g}$  程度が下限として望ましいと思われる。

アノード側ガス拡散層は、厚さ  $200\mu\text{m}$  程度のカーボンペーパーを用い、これに撥水性樹脂 (FEP) を 16wt% で含むアルコール分散溶液に含浸させたのち、約 380℃ で 1 時間程度焼成することにより作製する。カーボンペーパーおよび撥水性樹脂は、両方とも前述したカソード側ガス拡散層と同様のものを使用することができる。

このように作製した各ガス拡散層の表面に、白金担持カーボン (Pt/C): Nafion: PTFE の重量比が 100:20:5 になるように調整したスラリーを塗布し、これを乾燥させて、ガス拡散層上に厚み約  $20\mu\text{m}$  の触媒層 (アノードおよびカソード) を形成する。次に、これを加熱乾燥 (例えば 80℃ で 60 分) させ、溶媒として含まれるアルコール類を揮発除去する。

以上のようにして作製した各構成要素を、アノード側

ガス拡散層、アノード、固体高分子膜、カソード、カソード側ガス拡散層の順に積層し、ホットプレス処理（150℃、50kg/cm<sup>2</sup>、60sec）によって一体化する。

これによりセル 20 が完成される。

#### 1-4. 燃料電池の動作と本実施の形態の効果

このような固体高分子型燃料電池の稼働時には、当該燃料電池にアノードガスとして加湿した水素ガス、カソードガスとして空気を供給する。これにより、アノード側に供給されるアノードガスの水素はプロトン（ $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ ）となり、水和した状態で固体高分子膜 21 中をカソード 22 側へ移動する。一方、カソード側に供給されるカソードガスの酸素は固体高分子膜 21 中を移動してきたプロトンと化合して水を生じる（ $2H^+ + 2e^- + 1/2O_2 \rightarrow H_2O$ ）。

この化学反応機構（発電反応）によって生成する水、またはこれに加えてアノードガスとともにセルユニット 10 に供給される加湿水により、固体高分子膜 21 は湿潤状態になり、その内部抵抗が低下してイオン伝導性を呈する。一方、固体高分子膜 21 からは電極 22、23 を介し、主にカソードガス中に水分が蒸発する。固体高分子膜 21 の湿潤度は、これらの加湿水、生成水、蒸発水のバランスによって定まる。

ところで従来は燃料電池の稼働中、前記図 7（b）の従来セルの部分断面図に示すように、カーボン繊維とカーボン粒子からなるガス拡散層によって、カソード付近で発生した生成水がカソードガス中に過剰に蒸発する傾向があった。このようなことは、セルの温度に対し、燃料または酸化剤の加湿温度が低い場合などに特に顕著に



みられるものであって、カソード周辺の反応領域（いわゆる「三相界面」と呼ばれる電解質と触媒と空気がなす界面）では、固体高分子膜の水分がガス中に過剰蒸発し、膜のイオン伝導性が低下して発電効率に悪影響を招くことがあった。また、カソード側に外部より供給されるカソードガスの量が多い場合（低酸化剤利用率時）にも、燃料電池内部に取り込まれるカソードガスの流速が比較的速くなり、ガス拡散層およびカソードを通して固体高分子膜から蒸発する水分量が多くなる場合があった。

さらに、過剰な水分蒸発は生成水のみならず、上記発電反応において、プロトンに随伴して移動する移動水も大量蒸発させ、これも発電効率を悪くする原因となることもあった。

これらの問題に対して、まず想定されるのが、ガス拡散層に用いるカーボン繊維の密度を高くしたり、カーボン粒子の充填率を高めるといった対策である。しかし、この技術では、ガス拡散層を流通して外気に蒸発する水分が少なくなるために、固体高分子膜の保水性については改善されるものの、ガス拡散層の密度が高まるぶん、固体高分子膜に供給されるカソードガスまでがガス拡散層中を通りにくくなり、膜に十分に供給できずにやはり発電効率を下げてしまう原因となりうる。

このような方法では、固体高分子膜の良好な保水性と十分なガス拡散性とを両立させるのは困難であると考えられる。

これに対して本実施の形態は、カソード側ガス拡散層 24 を、保水性に優れる第一層 241 と、ガス拡散性に優れる第二層 242 の積層構造で構成することによって、以下

のような作用をなすことにより、保水性とガス拡散性を両立することができる。

すなわち本実施の形態では、まず図 3 のセル部分断面図に示すように、第二層 242 において平均孔径が  $10\mu\text{m}$  以上と比較的大きいので、カソードガスが容易に取り込まれる。当該第二層 242 では前記気孔と、比較的小さい平均比表面積 ( $100\text{m}^2/\text{g}$  未満) のカーボン粒子 242a およびカーボン繊維 242a のなす網目構造によって、取り込まれたカソードガスが広く第二層 242 中に広がり、良好なガス拡散が行われる (なお、当図ではガスの流れを分かり易くするためにガス拡散層の図示を簡略化している)。

次に、第一層 241 においては図 4 のセル部分断面図に示すように、平均孔径が  $10\mu\text{m}$  未満と比較的小さい気孔を有する第一層 241 において、発電反応による生成水が毛細管現象により当該第一層 241 にしみ込み、長期間にわたって滞留することができる。この水分の滞留により、ガス拡散層 24 に取り込まれたカソードガスは第一層 241 において湿潤され、固体高分子膜 21 に到達する時点ではある程度の水分を有するガスとなる。これにより、固体高分子膜 21 からカソードガスへの水分蒸発が抑制されるといった効果も得られる。さらに、上記毛細管現象の浸透作用による水分保持は、比較的大きい平均比表面積 ( $100\text{m}^2/\text{g}$  以上  $1000\text{m}^2/\text{g}$  以下) を有するカーボン粒子 241b の凹凸表面によっても行われ、総じて第一層 241 では良好な水分保持がなされることとなる。また、本実施の形態ではカソード側ガス拡散層 24 自体の厚みが従来と変わらない厚みで構成され、かつ第一層 241 が第二層

242 よりも薄く作製されているので、第一層 241 では保水性を確保しながらも適切なガス拡散性が奏される。

ところで燃料電池では、カソード側に外部より供給されるカソードガスの量が少ない場合（高酸化剤利用率時）には、燃料電池内部のカソードガスの流速低下に伴い、カソード側のガス拡散層に生成水が過剰に滞留しやすくなる。しかしながら本実施の形態では、第一層 241 において保水性を確保しながらも、第一層 241 の厚みが第二層 242 よりも薄く作製されているので、保水密度の増加が抑制され、過剰の水がガス拡散層にたまるのが回避される。

なお前述したように、ここで言う「保水量」とは、イオン交換水中で 1 時間浸漬、煮沸した後、室温まで冷却した被測定物に保持される水の単位面積（導電性保水手段が講じられている単位面積）当たり重量と定義する。また「保水密度」とは、保水手段が講じられた領域の厚みで、前記保水量を除いた値、すなわち、保水手段が講ぜられた領域の体積あたりの保水重量と定義する。

このように本実施の形態では、カソード側ガス拡散層を二つの異なる性質の層、すなわち保水性確保のための層（第一層）と、ガス拡散性確保のための層（第二層）を積層することにより、従来は困難と考えられていたこれら両特性の実現を可能にしている。

## 2. 性能比較実験

### 2-1. 各セルの作製

本発明の効果を確認するため、1-3 のセル作製方法と、次に示す表 1 のデータに基づいて、実施例および比較例、従来例の各セルを作製した。なお表 1 中の「第一層塗布

量」と「第二層塗布量」の単位はともに  $\text{mg}/\text{cm}^2$  である。

【表 1】

	第一層塗布量	第二層塗布量	保水量( $\text{mg}/\text{cm}^2$ )	保水密度( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
実施例1	0.20	1.0	0.5	0.50
実施例2	0.10	3.0	0.5	0.05
実施例3	0.30	9.0	1.5	0.05
実施例4	0.68	1.4	1.5	0.50
比較例1	0.16	0.8	0.4	0.50
比較例2	0.10	2.0	0.4	0.05
比較例3	0.08	3.5	0.5	0.04
比較例4	0.25	10.4	1.5	0.04
比較例5	0.22	0.8	0.5	0.60
比較例6	0.70	1.1	1.5	0.60
比較例7	0.74	1.2	1.6	0.50
比較例8	0.30	10.0	1.6	0.05
従来例	2.80		0.1	0.02

### 2-1-1. 実施例の作製

ここではカソード側ガス拡散層の作製方法について述べる。

多孔性基体（繊維状カーボン、東レ T G P - H - 60、厚み  $200\mu\text{m}$ ）に、撥水性樹脂（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、F E P）の 16w t % アルコール溶液を含浸させたのち、 $380^{\circ}\text{C}$  で 1 時間熱処理し、所定寸法に成形して、カソード側多孔性基体を片面に塗布、含浸させ、室温で乾燥させた（第二層）。この後、前記塗布面に、ケッチェンブラック E C（A K Z O 製）、P T F E ディスパージョンを混合したスラリーを塗布、含浸させた（第一層）。具体的な第一層および第二層の塗布重量は、表 1 に示す。

また、作製した多孔性基体の保水量と保水密度も同様にして表 1 に示す。

これにより、4 種類の実施例のセルを作製した。

### 2-1-2. 比較例の作製

比較例のカソード側ガス拡散層としては、実施例と同様に二層構造のカソード側ガス拡散層を作製した。比較例における第一層および第二層の塗布量、及び作製した多孔性基体の保水量及び保水密度は、それぞれ表 1 の通りである。

これにより、8 種類の比較例のセルを作製した。

### 2-1-3. 従来例の作製

従来例のカソード側ガス拡散層は、第一層、第二層の区別なく単一層構造とし、表 1 に示す重量のデンカブラック（電気化学工業製）、P T F E ディスパージョンを混合したスラリーを多孔性基体の両面に塗布すること以外

は、実施例と同様に作製したカソード側多孔性基体を用い、多孔性基体の保水量と保水密度は、表 1 に示す通りとなるように、図 3 の構成と同様のセルを作製した。

これにより、1 種類の従来例のセルを作製した。

## 2-2. 性能比較実験と考察

以上のように作製した実施例、比較例、従来例の各セル（合計 13 セル）について、以下の条件で酸化剤利用率の安定性、および特性を測定した。

### 3-2-1. 酸化剤利用率特性の測定実験と考察

カソードガス中の酸化剤の利用率を変化させたときのセル電圧の変化を調べるため、実施例 1～4. と比較例 1～4 および従来例について、酸化剤利用率に対するセル電圧の関係を調べた。酸化剤利用率の調整は、燃料電池に供給するカソードガスの流速を調整することによって行った。

具体的な試験条件は以下の通りで行った。

電流：400 m A / c m<sup>2</sup>

燃料：水素（燃料利用率 50%、加湿温度 80℃）

酸化剤（カソードガス）：空気（無加湿）

温度：70℃

この実験結果を図 5 に示す。

当図に示すように、燃料電池内のカソードガスの流速が速く、比較的固体高分子膜の湿潤性が失われやすい低酸化剤利用率時（酸化剤利用率 20～50%）から、カソードガスの流速が比較的遅く、固体高分子膜の湿潤性が高まりやすい（凝縮水が停滞しやすい）高酸化利用率時（酸

化剤利用率時 50～70%) の広範囲にかけて、実施例 1～4 は、比較例 1～4 と従来例に比べ、セル電圧が安定して高く維持されるという結果が得られた。

セルの乾燥が生じやすい低酸化剤利用率の領域において、比較例 1、2 と従来例のセル電圧が低くなった原因としては、これらの保水量が  $0.4\text{g}/\text{cm}^2$  または  $0.1\text{g}/\text{cm}^2$  と小さいので、局所的な乾燥が生じやすいことが考えられる。なお、従来例は、保水密度も小さく乾燥しやすい。

一方、凝縮水の停滞が発生しやすい高酸化剤利用率の領域において、比較例 3、4 と従来例のセル電圧が特に低くなった原因としては、これらの保水密度が、 $0.04\text{g}/\text{cm}^3$  または  $0.02\text{g}/\text{cm}^3$  と小さいため、ガス拡散層付近に凝縮水が停滞してしまい、ガス拡散性が低下することと考えられる。以上、実施例 1～4 のいずれも優れた酸化剤利用率特性を有することが明らかにされている。

これに対して、実施例 1～4 と比較例 1、2 は保水密度が  $0.05\text{g}/\text{cm}^3$  または  $0.50\text{g}/\text{cm}^3$  とより大きいので、固体高分子膜の発電効率（詳しくはイオン伝導性）が保たれ、当図に示されるような良好なセル電圧が発揮されたものと考えられる。特に実施例 1～4 は、 $0.5\text{mg}/\text{cm}^2 \sim 1.5\text{mg}/\text{cm}^2$  の大きい保水量を有しているので、前記高い保水密度と相まって固体高分子膜の湿潤性を保ちながら、凝縮水がガス拡散層付近に停滞することなく、良好なガス拡散性が維持される。

#### 2-2-2. 寿命特性の測定実験と考察

次に作製した各セルを用いて、セルの寿命特性を測定した。試験条件は以下の通りとした。

電 流 :  $400 \text{ m A} / \text{c m}^2$

燃 料 : 水 素 ( 燃 料 利 用 率 50%、 加 湿 温 度  $80^\circ\text{C}$  )

酸 化 剤 ( カ ソ ー ド ガ ス ) : 空 気 ( 酸 化 剤 利 用 率 50% )

温 度 :  $70^\circ\text{C}$

この実験結果を図 6 に示す。当図に示すように、実施例 1～4 はいずれも比較例 5～8 と従来例に比べ、経時的なセル電圧の低下が小さくとどまった。これは実施例 1～4 のカソード側ガス拡散層において、適切な保水性とガス拡散性の両方が確保されているのに対し、比較例 5、6 は保水密度が過大であり、実施例 7、8 は保水量が過大である。このため、比較例 5、6 では主に第一層で過剰な保水が進行し、ガス拡散性が低下し、セル電圧の低下が大きくなったと考えられる。一方、実施例 7、8 では第二層を含めて、保水過多のためガス拡散性が低下し、セル電圧の低下が大きくなったと考えられる。

以上の性能比較実験を鑑みると、第一層および第二層からなるカソード側ガス拡散層は、保水量を  $0.5 \text{ m g} / \text{c m}^2 \sim 1.5 \text{ m g} / \text{c m}^2$ 、かつ保水密度を  $0.05 \text{ m g} / \text{c m}^3 \sim 0.5 \text{ m g} / \text{c m}^3$  とすることにより、最大限の効果が得られることが明らかである。

### 3. その他の事項

上記実施の形態では、カソードガスとアノードガスの流れが x y 方向で直交するセルユニットに基づいて説明したが、セルユニットの構成はこれに限定せず、例えば各ガスの流れが平行な構成のセルユニットであってもよい。また各ガスの流れはこれ意外であってもよい。

また本発明は、実施の形態で挙げた構成よりも固体高



分子膜が薄い（特に  $50\mu\text{m}$  程度に至るほどの厚み）場合に適用すれば、少ない水分量でも固体高分子膜中のイオン伝導性を確保できるので、本発明により保湿効果を得ることによって、いっそう発電効率を向上させることが可能となる。

なお、カソード側ガス拡散層の第一層と第二層は、実施の形態のようにカソード側に第一層を接触させ、これに第二層を積層する構成に限らず、第一層と第二層との間に中間層を設けた構成であってもよい。

#### 産業上の利用可能性

以上の本発明の燃料電池は、自動車などの小型移動用電源として、また家屋用電源として利用することができる。

## 請求の範囲

1.

電解質膜の一方の面にカソードとガス拡散層、電解質の他方の面にアノードとガス拡散層がこの順に配されてなるセル構成を有し、カソード側のガス拡散層表面に沿って酸化剤ガス、アノード側のガス拡散層表面に沿って燃料ガスがそれぞれ流通されることにより発電する燃料電池であって、

カソード側のガス拡散層は、カソードと接する第一層と、当該第一層よりも厚く、その表面に沿って酸化剤ガスが流通する第二層からなることを特徴とする燃料電池。

2.

第二層の気孔の平均孔径が第一層の気孔の平均孔径よりも大きい構成であることを特徴とする請求の範囲 1 に記載の燃料電池。

3.

前記カソード側のガス拡散層の気孔は、繊維状の多孔性基体に導電性粒子を付着させた構成により形成されていることを特徴とする請求の範囲 1 に記載の燃料電池。

4.

前記カソード側のガス拡散層において、第一層中に含まれる導電性粒子の平均比表面積が、第二層中に含まれる導電性粒子の平均比表面積よりも大きいことを特徴とする請求の範囲 3 に記載の燃料電池。

5.

前記繊維状の多孔性基体はカーボンペーパーであり、前記導電性粒子はカーボン粒子であることを特徴とする請求の範囲 3 に記載の燃料電池。

6.

前記第一層のカーボン粒子は、ファーネスブラック、或いはファーネスブラックにアセチレンブラック、膨張黒鉛、繊維状黒鉛の中から選ばれたものを混合してなり、前記第二層のカーボン粒子は、アセチレンブラック、或いはアセチレンブラックにファーネスブラックを混合してなることを特徴とする請求の範囲5に記載の燃料電池。

7.

前記第一層中に含まれるカーボン粒子は平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g} \sim 1000\text{m}^2/\text{g}$  であり、前記第二層中に含まれるカーボン粒子は平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  未満であることを特徴とする請求の範囲6に記載の燃料電池。

8.

前記第一層および第二層からなるカソード側のガス拡散層は、保水量が  $0.5\text{mg}/\text{cm}^2 \sim 1.5\text{mg}/\text{cm}^2$ 、かつ保水密度が  $0.05\text{g}/\text{cm}^3 \sim 0.5\text{g}/\text{cm}^3$  であることを特徴とする請求の範囲1に記載の燃料電池。

9.

電解質膜の一方の面にカソードとガス拡散層、電解質の他方の面にアノードとガス拡散層がこの順に配されてなるセル構成を有し、カソード側のガス拡散層表面に沿って酸化剤ガス、アノード側のガス拡散層表面に沿って燃料ガスがそれぞれ流通されることにより発電する燃料電池であって、

カソード側のガス拡散層は、保水性の異なる2つの層からなることを特徴とする燃料電池。

10.

前記保水性の異なる2つの層のうち、保水性が比較的

高い層がカソードと接するように、前記ガス拡散層が配置されていることを特徴とする請求の範囲 9 に記載の燃料電池。

## 補正書の請求の範囲

[2001年10月26日(26.10.01)国際事務局受理:出願当初の請求の範囲9及び10は取り下げられた;他の請求の範囲は変更なし。(1頁)]

6

前記第一層のカーボン粒子は、ファーネスブラック、或いはファーネスブラックにアセチレンブラック、膨張黒鉛、繊維状黒鉛の中から選ばれたものを混合してなり、前記第二層のカーボン粒子は、アセチレンブラック、或いはアセチレンブラックにファーネスブラックを混合してなることを特徴とする請求の範囲5に記載の燃料電池。

7.

前記第一層中に含まれるカーボン粒子は平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g} \sim 1000\text{m}^2/\text{g}$  であり、前記第二層中に含まれるカーボン粒子は平均比表面積が  $100\text{m}^2/\text{g}$  未満であることを特徴とする請求の範囲6に記載の燃料電池。

8.

前記第一層および第二層からなるカソード側のガス拡散層は、保水量が  $0.5\text{mg}/\text{cm}^2 \sim 1.5\text{mg}/\text{cm}^2$ 、かつ保水密度が  $0.05\text{g}/\text{cm}^3 \sim 0.5\text{g}/\text{cm}^3$  であることを特徴とする請求の範囲1に記載の燃料電池。

9. (削除)

10. (削除)

図1

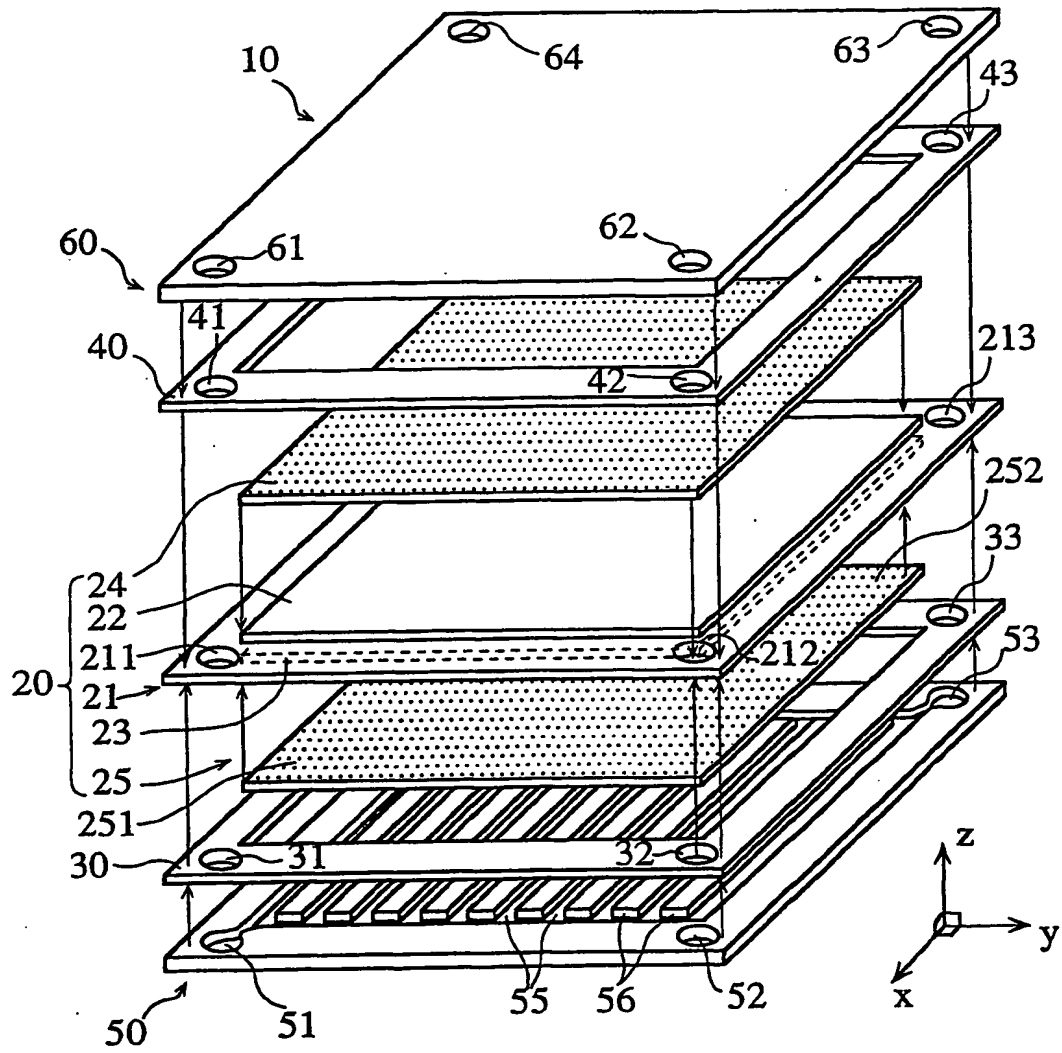


図2

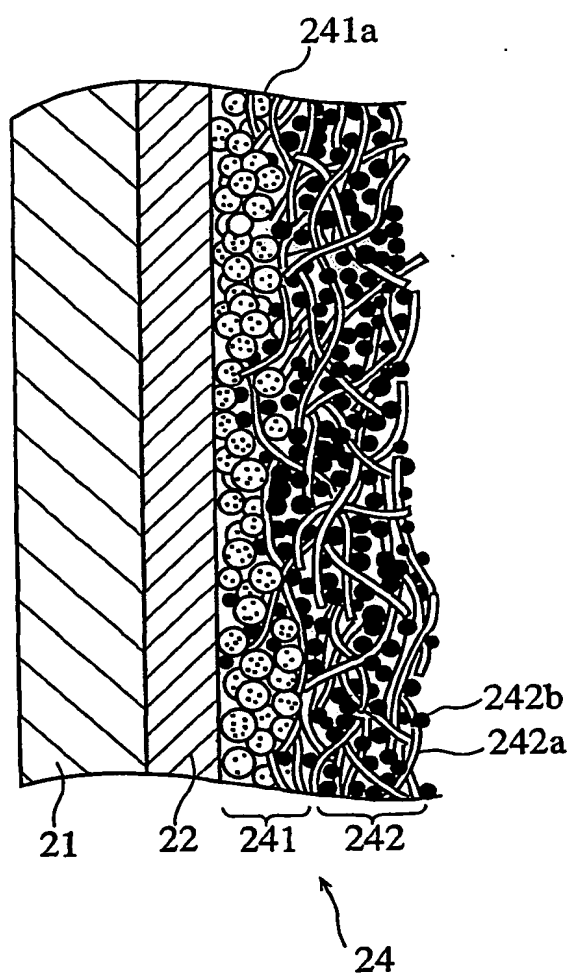


図3

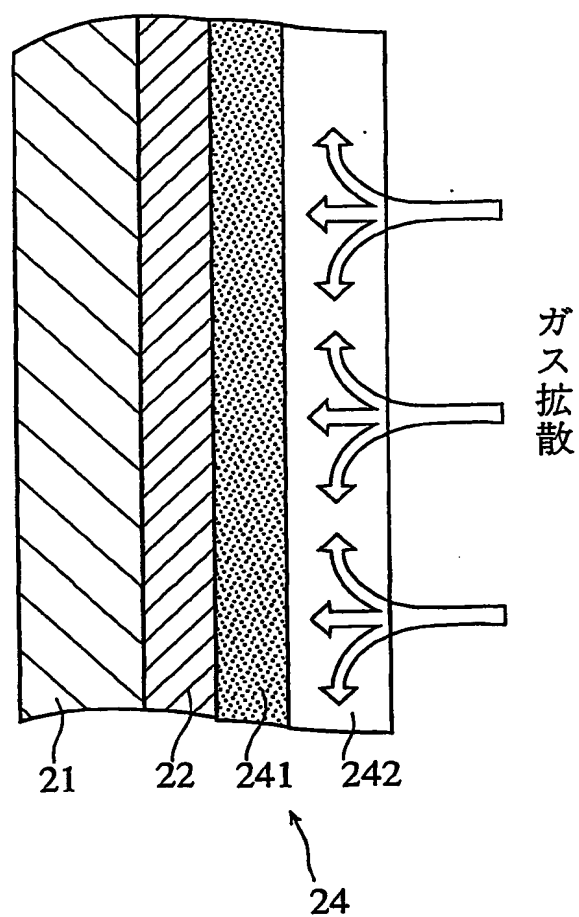




図4

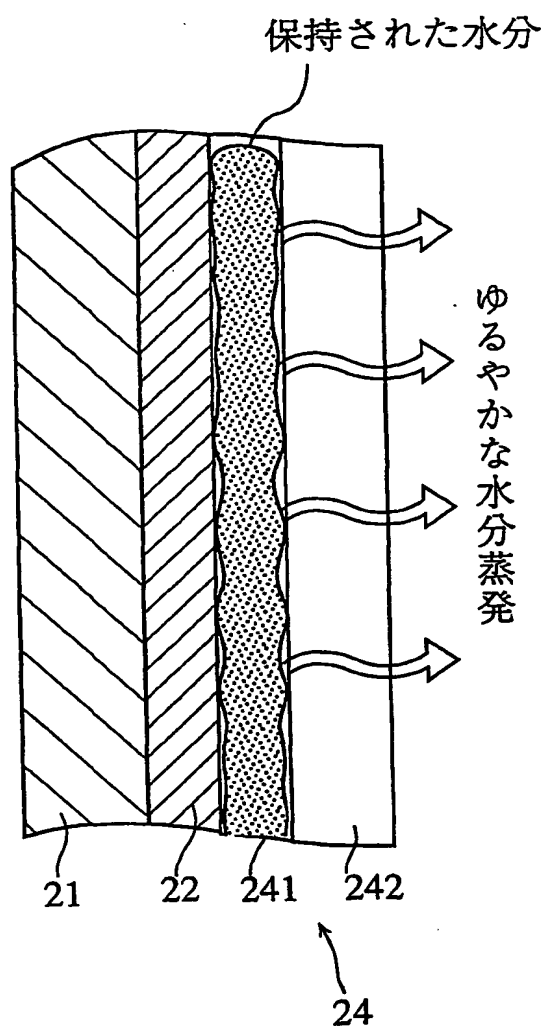


図5

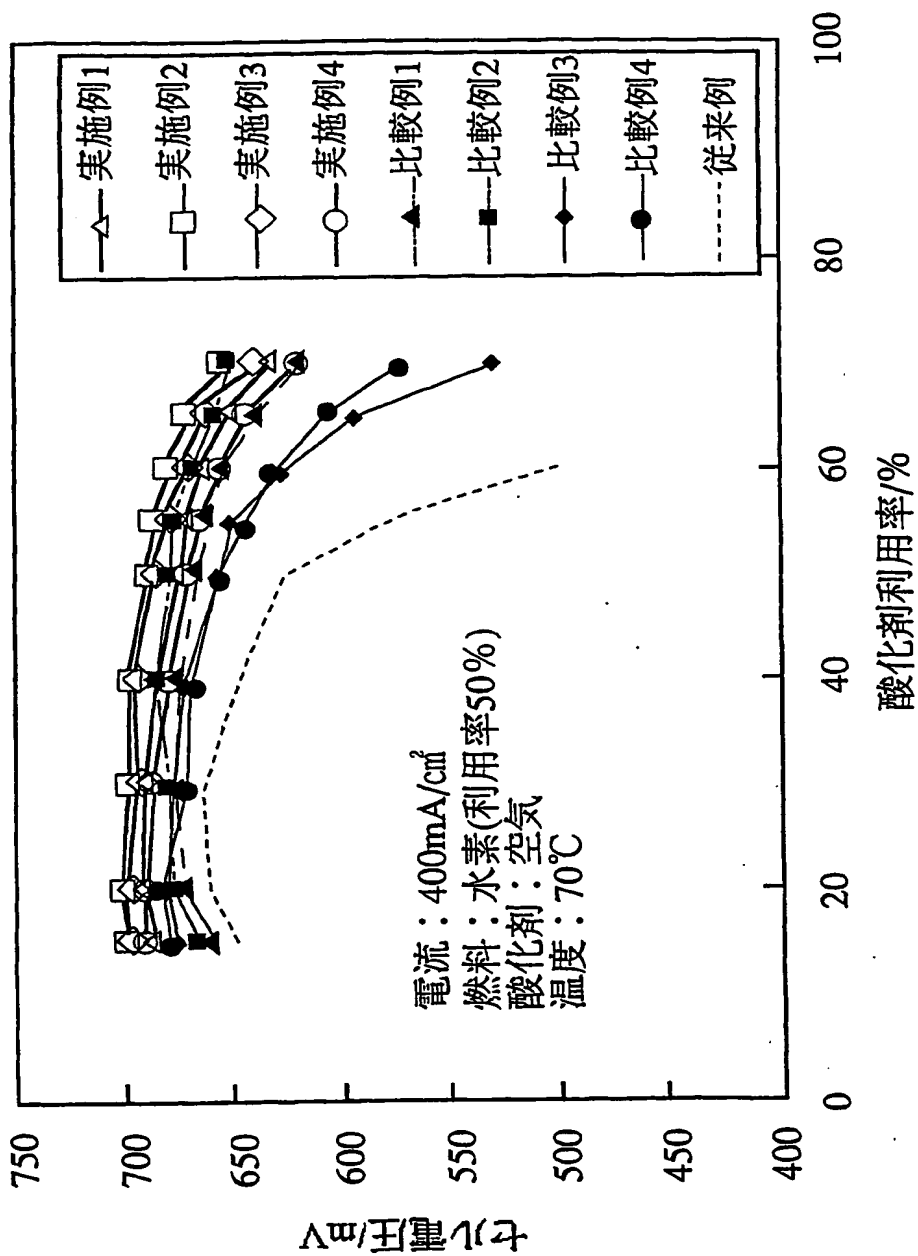


図6

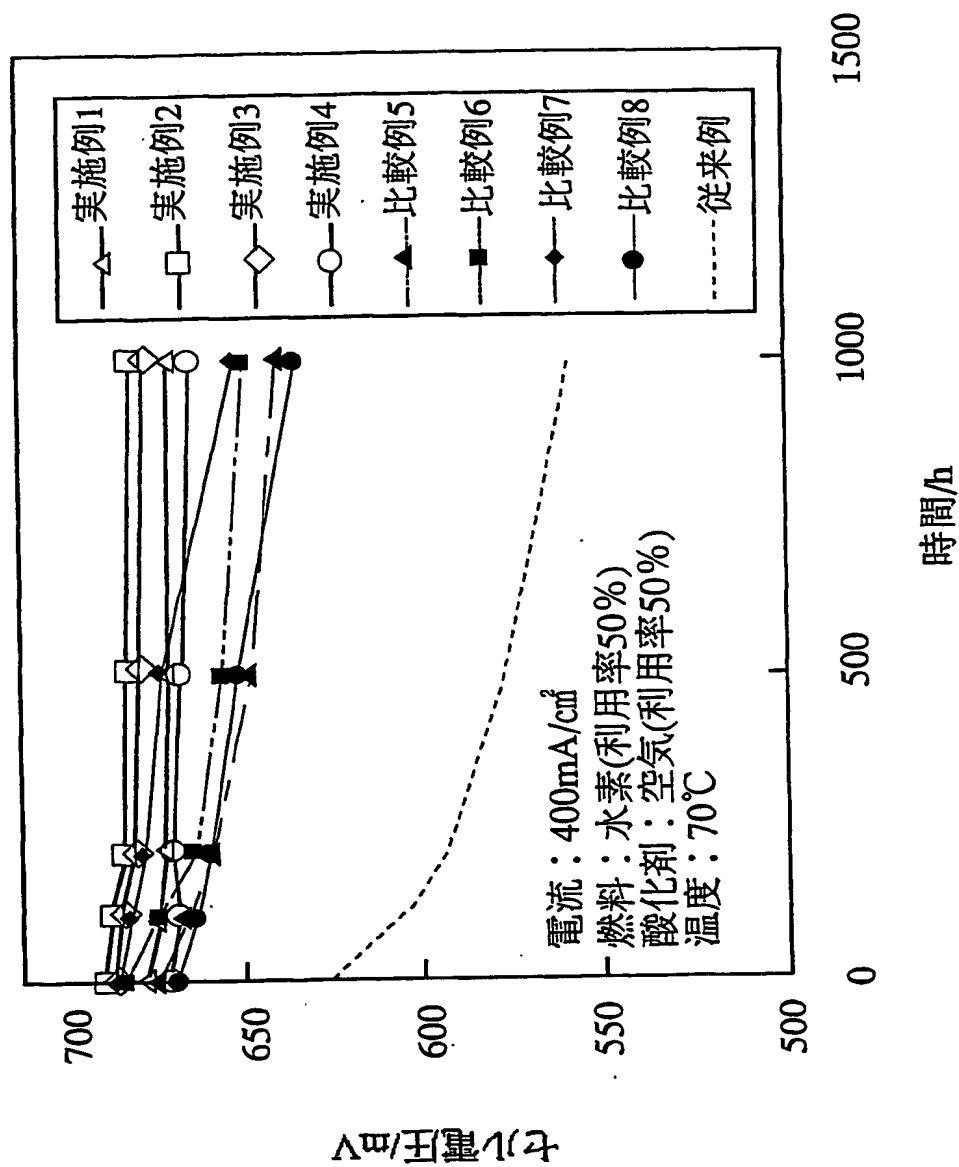
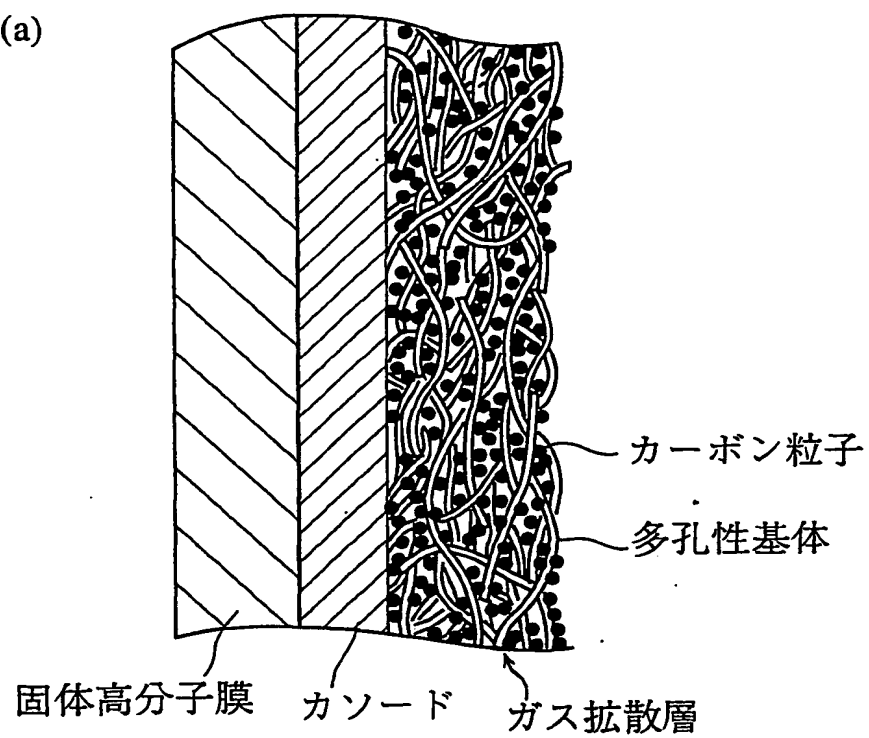
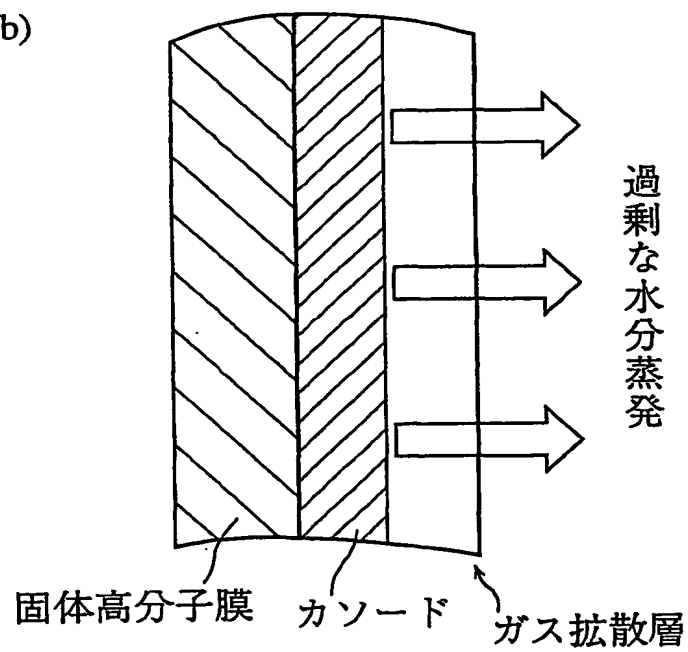


図7 (a)



(b)



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04505

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M8/10, H01M 4/86

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M8/10, H01M 4/86

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2001	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	W0 97/13287 A2 (THE DOW CHEMICAL COMPANY) 10 April, 1997 (10.04.97), Claims; page 10, line 32 to page 15, line7; Fig. 8 & EP 853824 A2 & JP 10-513006 A & US 5882810 A	1-3, 5 4, 6-8
X Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No.38500/1990 (Laid-open No.130150/1991) (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 26 December, 1991 (26.12.91), Full text (Family: none)	9-10 8
X Y	JP 7-326361 A (Toyota Motor Corporation), 12 December, 1995 (12.12.95), Claims; Par. Nos. [0055] to [0057]; Figs. 1, 6 to 7 (Family: none)	9-10 8
Y	JP 9-245802 A (Tanaka Kikinzoku Kogyo K.K.), 19 September, 1997 (19.09.97), Par. Nos. [0008] to [0012]; Fig. 2 (Family: none)	4, 6-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
21 August, 2001 (21.08.01)Date of mailing of the international search report  
04 September, 2001 (04.09.01)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04505

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-167622 A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 24 June, 1997 (24.06.97), Par. Nos. [0019] to [0020] (Family: none)	6-7
A	JP 7-22037 A (Kabushiki Kaisha Aqueous Research), 24 January, 1995 (24.01.95) (Family: none)	1-8, 9-10
A	JP 11-288727 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 19 October, 1999 (19.10.99) (Family: none)	1-8, 9-10

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04505

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of Item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

As described (on special pages), in order for a group of inventions described in claims to fulfil requirement of unity of invention, special technical features are needed for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept, and it is recognized that two inventions classified as claims 1-8 and 9-10 are described in this International Application.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
  
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
  
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04505

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

In order for a group of inventions described in claims to fulfil requirement of unit of invention, special technical features are needed for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept, and it is recognized that a group of inventions described in claims 1-10 are linked in such matters that "a fuel cell which has a cell structure comprising, disposed in the order mentioned, a cathode and a gas diffusion layer formed on one surface of an electrolytic film, and an anode and a gas diffusion layer on the other surface of the electrolytic film, and which generate power by allowing an oxidizing gas to flow along the gas diffusion layer surface on the cathode side and a fuel gas to flow along the gas diffusion layer surface on the anode side, the gas diffusion layer on the cathode side comprising two layers."

However, since these matters are disclosed in prior art documents, for example, a microfilm (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 26, Dec, 1991 (26. 12. 91), photographing the specifications and drawings attached to the patent application, Japanese Utility Model Application 2-38500 (Japanese Utility Model Application Laid-Open 3-130150), they do not constitute any special technical features.

Therefore, there are no special technical features among the group of inventions described in claims 1-10 for linking them so as to form a single general inventive concept. Accordingly it is evident that the group of inventions in claims 1-10 do not fulfill requirement of unity of invention.

In addition, according to specific modes of inventions described in independent claims, it is recognized that two inventions classified as claims 1-8 and 9-10 are disclosed in this International Application.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01M 8/02, H01M8/10, H01M 4/86

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01M 8/02, H01M8/10, H01M 4/86

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS  
 DIALOG (WPI/L)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	WO 97/13287 A2 (THE DOW CHEMICAL COMPANY) 10. April. 1997 (10. 04. 97), CLAIMS, page 10 line 32 - page 15 line 7, FIG. 8 & EP 853824 A 2 & JP 10-513006 A & US 5882810 A	1 ~ 3, 5 4, 6 ~ 8
X Y	日本国実用新案登録出願 2-38500 号 (日本国実用新案登録出願公開 3-130150 号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (三菱重工業株式会社) 26. 12月. 1991 (26. 12. 91), 全文 (ファミリーなし)	9 ~ 10 8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

21. 08. 01

国際調査報告の発送日

04.09.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号 100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4 X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 7-326361 A(トヨタ自動車株式会社)12.12月.1995(12.12.95), 特許請求の範囲,【0055】～【0057】,【図1】,【図6】～【図7】 (ファミリーなし)	9～10 8
Y	JP 9-245802 A(田中貴金属工業株式会社)19.9月.1997(19.09.97), 【0008】～【0012】,【図2】 (ファミリーなし)	4, 6～7
Y	JP 9-167622 A(松下電器産業株式会社)24.6月.1997(24.06.97), 【0019】～【0020】 (ファミリーなし)	6～7
A	JP 7-22037 A(株式会社エクス・リサーチ)24.1月.1995(24.01.95) (ファミリーなし)	1～8, 9～10
A	JP 11-288727 A(旭化成工業株式会社)19.10月.1999(19.10.99) (ファミリーなし)	1～8, 9～10

## 第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところこの国際調査機関は認めた。

(特別ページ)に記載したように、請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、この国際出願の請求の範囲には、1～8と9～10とに区分される2個の発明が記載されていると認める。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

## (第Ⅱ欄のつづき)

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1～10に記載されている一群の発明は、「電解質膜の一方の面にカソードとガス拡散層、電解質の他方の面にアノードとガス拡散層がこの順に配されてなるセル構成を有し、カソード側のガス拡散層表面に沿って酸化剤ガス、アノード側のガス拡散層表面に沿って燃料ガスがそれぞれ流通されることにより発電する燃料電池であって、カソード側のガス拡散層は2つの層からなる」という事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は先行技術文献、例えば、日本国実用新案登録出願2-38500（日本国実用新案登録出願公開3-130150号）の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム（三菱重工業株式会社）、26.12月.1991（26.12.91）等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲1～10に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存しないこととなる。そのため、請求の範囲1～10に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

そして、独立請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲には、1～8、9～10に区分される2個の発明が記載されていると認める。